

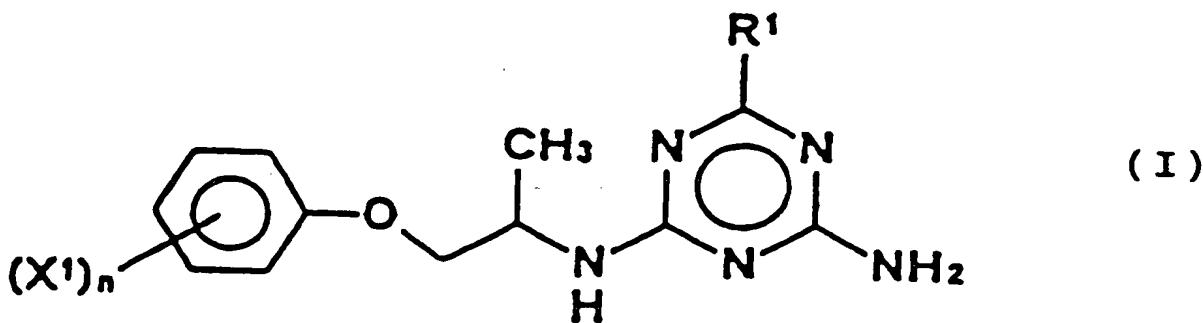


特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類6 C07D 251/18, A01N 43/68	A1	(11) 国際公開番号 WO96/25404
		(43) 国際公開日 1996年8月22日(22.08.96)
(21) 国際出願番号 (22) 国際出願日 1996年2月19日(19.02.96)	PCT/JP96/00360	(81) 指定国 AL, AM, AU, BB, BG, BR, CA, CN, CZ, EE, FI, GE, HU, IS, KG, KR, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, TT, UA, US, UZ, VN, ARIPO特許(KE, LS, MW, SD, SZ, UG), ユーラシア特許(AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 歐州特許(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(30) 優先権データ 特願平7/29124 1995年2月17日(17.02.95) JP		(添付) 公開書類 国際調査報告書
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社(DEMITSU KOSAN CO., LTD.)[JP/JP] 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP)		
(72) 発明者: および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 猪田峰行(KUBOTA, Mineyuki)[JP/JP] 斎藤雅俊(SAITOU, Masatoshi)[JP/JP] 小池和好(KOIKE, Kazuyoshi)[JP/JP] 尾川新一郎(OGAWA, Shin-ichiro)[JP/JP] 〒299-02 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内 Chiba, (JP)		
(74) 代理人 弁理士 中村静男, 外(NAKAMURA, Shizuo et al.) 〒110 東京都台東区東上野1丁目25番12号 熊切ビル2階 Tokyo, (JP)		

(54) Title : TRIAZINE DERIVATIVES

(54) 発明の名称 トリアジン誘導体

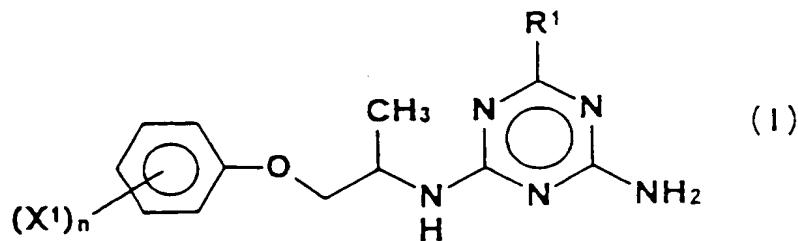


(57) Abstract

A novel triazine derivative represented by general formula (I), a process for producing the same, and a novel herbicide containing the same; wherein X¹ represents linear or branched C₁₋₄ alkyl or halogeno; n represents an integer of 0 to 4, provided that when n is an integer of 2 or above, then X¹'s may be the same or different; and R¹ represents linear or branched C₁₋₁₀ alkyl optionally having one to four substituents selected from C₁₋₄ alkoxy and/or hydroxy, provided that when the linear or branched C₁₋₁₀ alkyl is substituted by two or more C₁₋₄ alkoxy groups and/or hydroxy groups, then these substituents may be either the same or different. The triazine derivatives and herbicide containing the same as the active ingredient exhibit a very excellent crop/weed selectively even under severe conditions, for example, excessively humid conditions liable to induce chemical damages.

(57) 要約

本発明は、一般式 (I)



(式中、 X' は直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基またはハロゲン原子であり、nは0又は1～4の整数であり、nが2以上の整数である場合、複数の X' は互いに同一または異なるあっていてもよい；R'は1～4個のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基であり、前記直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基が2個以上のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基で置換されている場合、複数のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なるあっていてもよい。) で表されるトリアジン誘導体、その製法並びに該化合物を含有する除草剤に関する。

本発明により、薬害を生じやすい過水分条件下等の悪条件下においても、極めて優れた作物一雑草選択性を示す新規なトリアジン誘導体およびそれを有効成分とする新規な除草剤が提供される。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AL	アルバニア	DE	ドイツ	L	リヒテンシュタイン	P L	ボーランド
AM	アルメニア	DK	デンマーク	LC	セントルシア	PT	ポルトガル
AT	オーストリア	EE	エストニア	LK	スリランカ	PRO	ルーマニア
AU	オーストラリア	ES	スペイン	LR	リベリア	RUD	ロシア連邦
AZ	アゼルバイジャン	FIR	フィンランド	LS	レソト	SDE	スードアン
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	FR	フランス	LT	リトアニア	SSE	スウェーデン
BB	ベルバドス	GA	ガボン	LU	ルクセンブルグ	SGI	シンガポール
BEE	ベルギー	GB	イギリス	LV	ラトヴィア	SIK	スロヴェニア
BFF	ブルガリア・ファソ	GE	グルジア	MC	モナコ	SNK	スロヴァキア
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MD	モルドバ共和国	SNZ	ゼネガル
BJ	ベナン	GR	ギリシャ	MG	マダガスカル	SZ	スワジラン
BR	ブラジル	HU	ハンガリー	MK	マケドニア旧ユーゴスラ	TDD	チャド
BY	ベラルーシ	IE	アイルランド	VI	ヴァイエ共和国	TGJ	チートゴ
CA	カナダ	IL	イスラエル	ML	マリ	TM	タジキスタン
CFF	中央アフリカ共和国	IS	イスランド	MN	モンゴル	TR	トルコメニスタン
CG	コンゴ	IT	イタリア	MR	モーリタニア	TT	トルコ
CH	スイス	JP	日本	MW	マラウイ	UA	トリニダード・トバゴ
CI	コート・ジボアール	KE	ケニア	MX	メキシコ	UG	ウガンダ
CM	カメルーン	KG	キルギスタン	NE	ニジニエール	US	アメリカ合衆国
CN	中国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	NL	オランダ	UZ	ウズベキスタン
CU	キューバ	KR	大韓民国	NO	ノールウェー	VN	ヴィエトナム
..	... エニ...セモ...	KZ	カザフスタン	NZ	ニュージーランド		

明 糸田 書

トリアジン誘導体

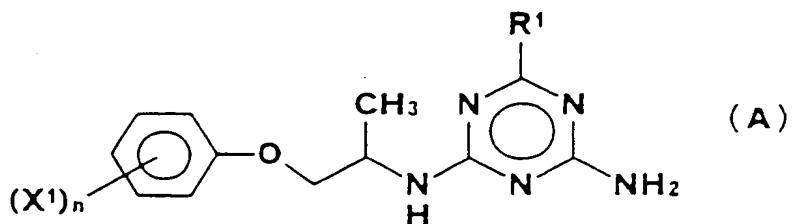
技術分野

本発明は、新規なトリアジン誘導体、その製造方法およびそれを有効成分とする除草剤に関する。

背景技術

本願出願人による国際出願に係る国際公開第WO 90/09378号公報記載のトリアジン誘導体は、茎葉処理・土壤処理のいずれにおいてもイネ科畑作物、特にイネに対して安全で、難防除雑草に対しては高い除草活性を示した。本公報記載のトリアジン誘導体の基本骨格の一般式を下記に示す。

(基本骨格A)



(式中、 X^1 はメチル基、トリフルオロメチル基、メトキシ基またはフッ素原子であり、 n は0、1または2の整数であり、 R^1 はハロアルキル基である。)

上記のような作物-雑草間の選択性の高い除草剤は、通常の使用においては、作物に薬害を及ぼすことなく雑草を防除しうるものであるが、気象・環境・誤用等様々な要因により、作物に薬害を発生させてしまうことがある。特に、生育抑制型（中でも根部阻害型）除草剤は、過水分条件下では薬害を生じやすい。それ故、そのような悪条件下においてもなお作物に薬害を及ぼさず、雑草を防除でき

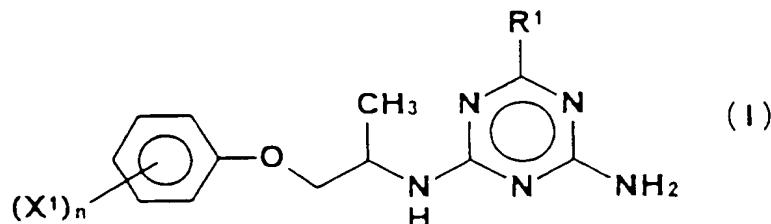
る、より作物ー雑草間の選択性の高い除草剤の開発が望まれている。

本発明は、薬害を生じやすい過水分条件下等の悪条件下においても、作物ー雑草間の選択性の高い、すなわち薬害を生じやすい条件下においてもイネ科作物に対しては安全で、かつ雑防除雑草に対しては高い除草活性を示す新規なトリアジン誘導体を見出すことを目的とする。

発明の開示

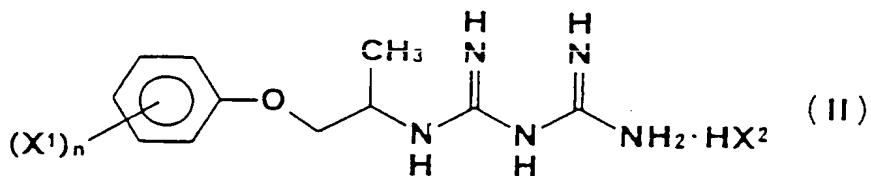
本発明者らは上記目的を達成すべく銳意検討を行った結果、上記国際公開公報記載の化合物の内、上記基本骨格Aのトリアジン誘導体のR'基をハロアルキル基から、アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよいアルキル基に置換することにより、作物ー雑草間の選択性が顕著に向ふることを見出し本発明を完成した。

すなわち本発明は、一般式(I)



(式中、X'は直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基またはハロゲン原子であり、nは0又は1～4の整数であり、nが2以上の整数である場合、複数のX'は互いに同一または異なっていてもよい；R'は1～4個のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい、直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基であり、前記直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基が2個以上のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基で置換されている場合、複数のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なっていてもよい。)で表されるトリアジン誘導体またはその塩（以下、「トリアジン誘導体(I)」という。）を第一の要旨とする。

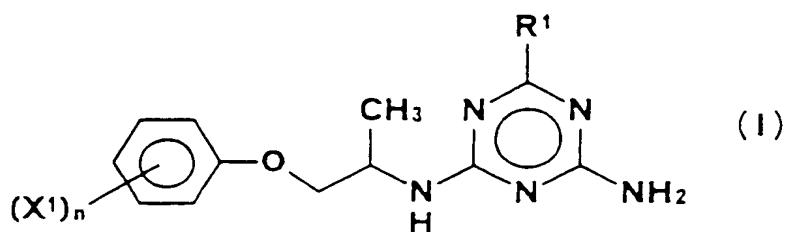
また、本発明は、一般式 (II)



(式中、 X^1 は直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル基またはハロゲン原子であり、 n は0又は1~4の整数であり、 n が2以上の整数である場合、複数の X^1 は互いに同一または異なっていてもよい； X^2 はハロゲン原子である。)で表されるアルキルビグアニドの塩（以下、「アルキルビグアニドの塩 (II)」という。）と、一般式 (III)



(式中、 R^1 は1~4個の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_{10}$ アルキル基であり、前記直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_{10}$ アルキル基が2個以上の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基で置換されている場合、複数の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なっていてもよい； R^2 は $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル基である。)で表されるエステル類（以下、「エステル類 (III)」という。）とを反応させることを特徴とする一般式 (I)



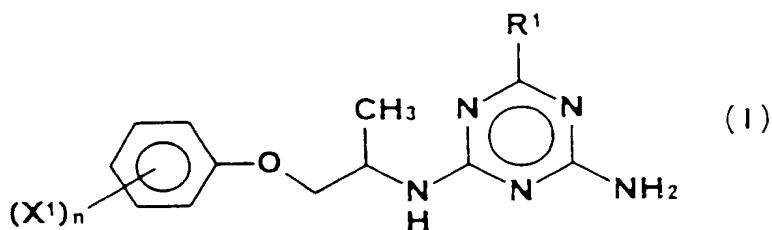
(式中、 X' 、 n および R' は上記定義のとおりである。)で表されるトリアジン誘導体の製造方法を第二の要旨とする。

さらに、本発明は、上記本発明の第一の要旨であるトリアジン誘導体(I)を有効成分として含有する除草剤を第三の要旨とする。

さらに、本発明は、除草有効量の上記本発明の第一の要旨であるトリアジン誘導体(I)を、そのままの形態でまたは助剤と共に施用することを特徴とする除草方法を第四の要旨とする。

発明を実施するための最良の形態

本発明の第一の要旨であるトリアジン誘導体(I)は、下記一般式(I)



によって表される化合物またはその塩である。

上記一般式(I)において、 X' は直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基、またはハロゲン原子を示す。

ここで、 X' が直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である場合の具体例としては、例えばメチル基、エチル基、 n -ブロビル基、 i -ブロビル基、 n -ブチル基、 i -ブチル基、 $s\ e\ c$ -ブチル基、 $t\ e\ r\ t$ -ブチル基、シクロプロビル基、シクロブチル基が挙げられ、好ましくはメチル基である。

X' がハロゲン原子である場合の具体例としては、例えば塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子が挙げられ、好ましくはフッ素原子である。

X' の置換位置は、ベンゼン環の2～6位のいずれであってもよく、好ましくは3位および/または5位である。

上記一般式(I)において、 n は0または1～4の整数を示し、好ましくは0、

1または2である。

ここで、nが2以上の整数である場合、複数のX'は互いに同一または異なっていてもよい。

上記一般式(I)において、R'は1～4個のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐C₁～C₁₀アルキル基である。

ここで、R'がC₁～C₄アルコキシ基またはヒドロキシ基によって置換されていない、未置換の直鎖または分岐C₁～C₁₀アルキル基である場合の具体例としては、例えば上記X'において説明したC₁～C₄アルキル基に加え、n-ペンチル基、i-ペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基、n-ヘキシル基、i-ヘキシル基、sec-ヘキシル基、tert-ヘキシル基、n-ヘプチル基、i-ヘプチル基、sec-ヘプチル基、tert-ヘプチル基、n-オクチル基、i-オクチル基、sec-オクチル基、tert-オクチル基、n-ノニル基、i-ノニル基、sec-ノニル基、tert-ノニル基、n-デシル基、i-デシル基、sec-デシル基、tert-デシル基、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロベンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等が挙げられ、好ましくはメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、i-ブチル基、n-ペンチル基、シクロヘキシル基である。

R'が、C₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されている場合における置換基C₁～C₄アルコキシ基の具体例としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、i-プロポキシ基、n-ブトキシ基、i-ブトキシ基、tert-ブトキシ基等が挙げられ、好ましくはメトキシ基、tert-ブトキシ基である。

R'が、2個以上のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基で置換されているC₁～C₁₀アルキル基である場合、置換基である複数のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なってもよい。

R'が1～4個のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されている場合の具体例としては、例えばCH₃OCH₂-基、CH₃OCH₂H₄-

基、 $\text{CH}_3\text{OC}_3\text{H}_6$ —基、 $\text{CH}_3\text{OC}_4\text{H}_8$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OCH}_2$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OC}_2$ H_4 —基、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OC}_3\text{H}_6$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OC}_4\text{H}_8$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OC}_5\text{H}_{10}$ —基、 HOCH_2 —基、 HOCH_2H_4 —基、 HOCH_3H_6 —基、 HOCH_4H_8 —基、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{CH}$ —基、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{C}_2\text{H}_3$ —基、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{C}_3\text{H}_5$ —基、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{C}_4\text{H}_7$ —基、 $\text{CH}_3(\text{OCH}_3)\text{CH}$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5(\text{OCH}_3)\text{CH}$ —基、 $\text{CH}_3\text{OC}\text{H}_2(\text{CH}_3)\text{CH}$ —基、 $\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_3)_2\text{C}$ —基、 $(\text{CH}_3)_3\text{C}$ —基、 $\text{CH}_2\text{OH}(\text{CH}_3)_2\text{C}$ —基、 $(\text{CH}_3)_2\text{COH}$ —基、 $\text{C}_2\text{H}_5(\text{OH})\text{CH}$ —基、メチル基で置換されたシクロプロピル基、メチル基で置換されたシクロブチル基、メチル基で置換されたシクロペンチル基、メチル基で置換されたシクロヘキシル基、エチル基で置換されたシクロペンチル基、エチル基で置換されたシクロヘキシル基等が挙げられる。

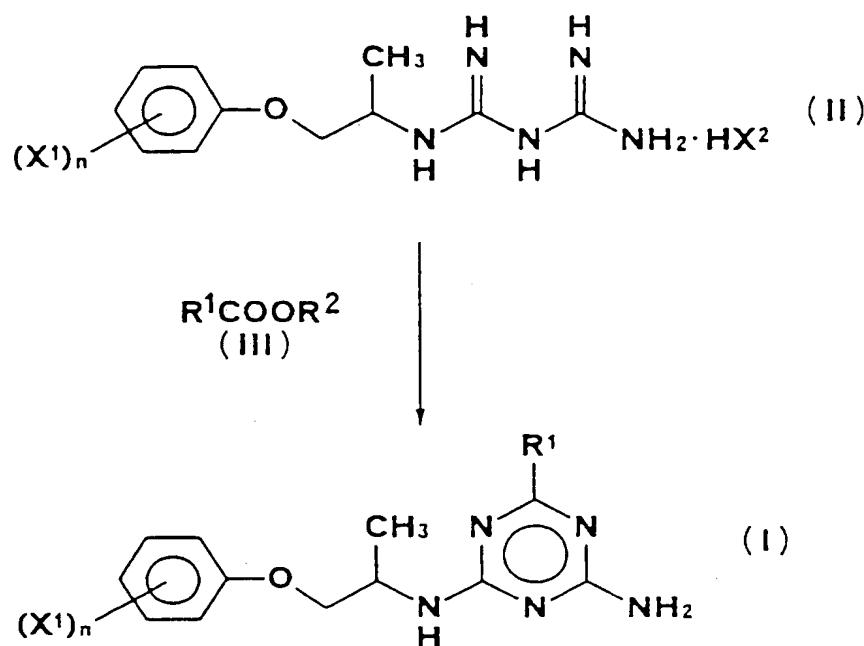
R^1 は、好ましくは1～4個の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_8$ アルキル基である。より好ましくは未置換の直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_8$ アルキル基、または、1または2個の $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルコキシ基で置換されている直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル基または1個のヒドロキシ基で置換されている直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル基である。さらに好ましくは、 R^1 は1または2個のメトキシ基、1個のブトキシ基または1個のヒドロキシ基によって置換された、直鎖または分岐 $\text{C}_1\sim\text{C}_4$ アルキル基またはシクロアルキル基である。

本発明の一般式(I)で表されるトリアジン誘導体には光学異性体が存在し、通常ラセミ体として得られるが、不齊合成などの既知の方法で対掌体の一方のみを得ることも可能である。本発明のトリアジン誘導体(I)は、ラセミ体であっても、あるいは光学異性体単独であっても除草活性を示す。本発明のトリアジン誘導体(I)は、上記ラセミ体および上記それぞれの光学異性体を包含するものである。さらに、本発明のトリアジン誘導体(I)は、無機酸または有機酸の塩であっても除草活性成分として使用しうる。

ここで、本発明のトリアジン誘導体と塩を形成しうる酸としては、例えば、塩酸、ヨウ化水素酸、臭化水素酸、フッ化水素酸、硫酸、硝酸、リン酸等の無機酸

; および酢酸、メタンスルホン酸、トルエンスルホン酸などのスルホン酸等の有機酸が挙げられる。

本発明の第二の要旨であるトリアジン誘導体の製造方法は、反応式



(反応式中、 X' 、 n および R' は、前記トリアジン誘導体 (I) において定義したとおりであり、 X^2 はハロゲン原子であり、 R^2 は $C_1 \sim C_4$ アルキル基である。) によって示され、アルキルビグアニドの塩 (II) をエステル類 (III) と反応させることにより、トリアジン環を形成させて目的のトリアジン誘導体を得るものである。

本反応は、触媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる触媒としては、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、マグネシウムジエトキシド等のアルコキシド類；リン酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の無機塩基；および 1, 8-ジアザビシクロ [5, 4, 0] -7-ウンデセン (DBU)、1, 5-ジアザビシクロ [4, 3, 0] -5-ノネン (DBN)、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基が挙げられ、

好ましくはナトリウムメトキシドおよびナトリウムエトキシドである。

用いる触媒の量は、通常アルキルビグアニドの塩（II）に対して1. 1～10当量、好ましくは1. 5～5当量である。

本反応で用いるエステル類（III）の量は、通常アルキルビグアニドの塩（II）に対して1～10当量、好ましくは1～5当量である。

本反応は、溶媒の存在下に行うのが好ましく、本反応で用いることができる溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類；アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサン等のケトン類；n-ヘキサン、n-ヘプタン、n-デカン等の脂肪族炭化水素類；ベンゼン、デカリン、アルキルナフタレン等の環状炭化水素類；四塩化炭素、二塩化メチレン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等の塩化炭化水素類；およびテトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類などが挙げられ、好ましくはアルコール類であり、特に好ましくはメタノールおよびエタノールである。

本反応では、エステル類（III）の加水分解を防ぐために、脱水剤を使用することができる。本発明の方法において用いることができる脱水剤としては、例えばモレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウム、無水硫酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウム、硫酸マグネシウム、炭酸カリウム、酸化バリウム等が挙げられ、モレキュラーシーブ、無水硫酸カルシウムが特に好ましい。脱水剤の量は、アルキルビグアニドの塩（II）に対して10から200重量%であり、好ましくは50～100重量%である。

本反応の反応温度は、通常-10～150°Cであり、好ましくは-10～120°Cである。反応時間は、通常2～30時間であるが、7～15時間程度が好ましい。

反応終了後、常法に従い、反応混合物を水に注加し、酢酸エチル等の有機溶媒で目的物を抽出し、得られた有機層を無水硫酸ナトリウム等の脱水剤で脱水した後、有機溶媒を減圧下に留去する等の手段により除去する。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー等の手段により精製することにより目的のトリアジン誘導体を結晶として単離することができる。

次に本発明の第三の要旨であるトリアジン誘導体またはその塩を有効成分として含有する除草剤について説明する。

本発明の除草剤は、一般式 (I) で表される本発明の新規なトリアジン誘導体またはその塩を有効成分として含有するものであって、これらの化合物を溶媒などの液状担体または鉱物質微粉などの固体担体と混合し、水和剤、乳剤、粉剤、粒剤などの形態に製剤化して使用することができる。製剤化に際して乳化性、分散性、展着性などを付与するためには界面活性剤を添加すればよい。

本発明の除草剤を水和剤の形態で用いる場合、通常は本発明のトリアジン誘導体 (I) 10～55重量%、固体担体40～88重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して組成物を調製し、これを用いればよい。

また、乳剤の形態で用いる場合、通常は本発明のトリアジン誘導体 (I) 20～50重量%、溶剤35～75重量%および界面活性剤5～15重量%の割合で配合して調製すればよい。

また、粉剤の形態で用いる場合、通常は本発明のトリアジン誘導体 (I) 1～15重量%、固体担体80～97重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。

さらに、粒剤の形態で用いる場合は、本発明のトリアジン誘導体 (I) 1～15重量%、固体担体80～97重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。

ここで固体担体としては鉱物質の微粉が用いられ、この鉱物質の微粉としては、例えばケイソウ土、消石灰などの酸化物、リン灰石などのリン酸塩、セッコウなどの硫酸塩、タルク、バイロフェライト、クレー、カオリン、ベントナイト、酸性白土、ホワイトカーボン、石英粉末、ケイ石粉などのケイ酸塩などを挙げることができる。

また、溶剤としては有機溶媒が用いられ、具体的にはベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、オークロロトルエン、トリクロロエタン、トリクロロエチレンなどの塩素化炭化水素、シクロヘキサノール、アミルアルコール、エチレングリコールなどのアルコール、イソホロン、シクロヘキサン、シクロヘキセニルーシクロヘキサンなどのケトン、ブチルセロソルブ、ジエチルエー

テル、メチルエチルエーテルなどのエーテル、酢酸イソプロピル、酢酸ベンジル、フタル酸メチルなどのエステル、ジメチルホルムアミドなどのアミドあるいはこれらの混合物を挙げることができる。

さらに、界面活性剤としては、アニオン型、ノニオン型、カチオン型あるいは両性イオン型（アミノ酸、ベタインなど）のいずれを用いることもできる。

本発明の除草剤は、必要に応じて、殺虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、肥料などと混用することができる。

本発明の除草剤は、原液の形態であってもよく、その場合、最終使用者が適宜希釀して使用することができる。

次に、本発明の第四の要旨である、除草有効量の前記本発明のトリアジン誘導体またはその塩を、そのままの形態でまたは助剤と共に施用することを特徴とする除草方法について説明する。

ここで、助剤とは、それ自体は除草活性を有しておらず、前記した本発明の除草剤を水和剤、乳剤、粉剤、粒剤などの形態に製剤化するために、本発明のトリアジン誘導体（I）に添加するもの、およびこれらの製剤に乳化性、分散性、展着性を付与するための物質等をいう。

施用は、例えば、栽培植物の生育地を、雑草の発芽前又は発芽後に、前記本発明のトリアジン誘導体、その塩もしくは光学異性体、または該化合物を含有する前記本発明の除草剤で処理することからなる。

施用手段は、栽培植物及び使用環境により異なるが、例えば、噴霧、散水、散布、注水等であり得る。

本発明の除草方法は、例えば、イネ、コムギ、オオムギ、トウモロコシ、エンバク、ソルガム等のイネ科作物、ダイズ、ワタ、ビート、ヒマワリ、ナタネ等の広葉作物の栽培において有用であり、その他果樹、果菜類、根菜類、葉菜類等の野菜や芝生等にも有用である。。

本発明の除草剤は、例えば、オオイヌノフグリ、スミレ、イヌタデ、ヤエムグラ、カミツレ、オドリコソウ、ヒナゲシ、ノスズメノテッポウ、スズメノカタビラ、野生エンバク、イチビ、オナモミ、アサガオ、シロザ、アオビュ、チョウセ

ンアサガオ、イヌホウズキ、エノコログサ、メヒシバ、シャッターケーン、ノビユ、コナギ、キカシグサ、アゼナ、ミヅハコベ、イヌホタルイ、タマガヤツリ、マツバイ、ミズガヤツリ、ウリカワ、オモダカ等の雑草の防除に有用である。

実施例

以下、実施例および除草剤実施例によって本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

(実施例 1)

特開昭63-264465号公報記載の方法を用いて合成した2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)イソプロビルビグアニド塩酸塩(アルキルビグアニドの塩(II)に相当)5.00g(16.7mmol)を、無水メタノール30mlに溶解し、ここに脱水剤のモレキュラーシーブ3A 4.5gを加えた。-10°Cで搅拌しながら塩基のナトリウムメトキシド1.80g(33.4mmol)を加え、さらにプロピオン酸メチル(エステル類(III)に相当)1.47g(16.7mmol)を滴下した。12時間搅拌した後、モレキュラーシーブ3Aを濾別し、母液をエバボレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50mlと水50mlを加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバボレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:ヘキサン/酢酸エチル=1/1)により精製し、目的の2-アミノ-4-[2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)イソプロビルアミノ]-6-エチル-1, 3, 5-トリアジン4.27g(収率85%)を得た。得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(実施例 2)

特開昭63-264465号公報記載の方法を用いて合成した2-(3', 5'-ジメチルフェノキシ)イソプロビルビグアニド塩酸塩(アルキルビグアニドの塩(II)に相当)5.00g(16.7mmol)を、無水メタノール30mlに溶解した。-10°Cで搅拌しながら塩基のナトリウムメトキシド1.80g

(33.4 mmol) を加え、さらに酢酸エチル（エステル類（III）に相当）1.47 g (16.7 mmol) を滴下した。12時間攪拌した後、析出物を濾別し、母液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50mlと水50mlを加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン／酢酸エチル=1/1）により精製し、目的の2-アミノ-4-[2-(3',5'-ジメチルフェノキシ)イソプロピルアミノ]-6-メチル-1,3,5-トリアジン3.45 g (収率72%)を得た。得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(実施例3～5および7～18)

実施例1において用いたプロピオン酸メチル（エステル類（III）に相当）の代わりに表1に記載のエステルを用いた以外は実施例1と同様に反応を行った。用いたエステルと得られたトリアジン化合物の構造および反応収率を表1に示し、得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(実施例6)

特開昭63-264465号公報記載の方法を用いて合成した2-(3'、5'-ジメチルフェノキシ)イソプロピルビグアニド塩酸塩（アルキルビグアニドの塩（II）に相当）5.00 g (16.7 mmol) に、塩基のナトリウムメトキシド28%メタノール溶液9.66 g (50.1 mmol) を室温で攪拌しながら加えた。さらに、ここにトリメチル酢酸メチル（エステル類（III）に相当）5.82 g (50.1 mmol) を滴下した。反応液を7時間加熱還流した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50mlおよび水50mlを加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン／酢酸エチル=1/1）により精製し、目的の2-アミノ-4-[2-(3',5'-ジメチルフェノキシ)イソプロピルアミノ]-6-tert-ブチル-1,3,5-トリアジン4.9

4 g (収率90%)を得た。得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(実施例19)

特開昭63-264465号公報記載の方法を用いて合成した2-(3'-フルオロフェノキシ)イソプロピルビグアニド塩酸塩(アルキルビグアニドの塩(II)に相当)5.00g(19.9mmol)に、塩基のナトリウムメトキシド28%メタノール溶液11.5g(59.7mmol)を室温で攪拌しながら加えた。さらに、ここにトリメチル酢酸メチル(エステル類(III)に相当)6.93g(59.7mmol)を滴下した。反応液を7時間加熱還流した後、析出物を濾別し、濾液をエバポレーターにより濃縮した。得られた残渣に酢酸エチル50mlおよび水50mlを加え、分液した。酢酸エチル層を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、エバポレーターにより溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:ヘキサン/酢酸エチル=1/1)により精製し、目的の2-アミノ-4-[2-(3'-フルオロフェノキシ)イソプロピルアミノ]-6-tert-ブチル-1,3,5-トリアジン4.77g(収率85%)を得た。得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(実施例20および21)

実施例19において用いたトリメチル酢酸メチル(エステル類(III)に相当)の代わりに表1に記載のエステルを用いた以外は実施例19と同様に反応を行った。用いたエステルと得られたトリアジン化合物の構造および反応収率を表5に示し、得られたトリアジン化合物のNMR及びIRデータを表2に示した。

(実施例22及び23)

実施例19において用いた2-(3'-フルオロフェノキシ)イソプロピルビグアニド塩酸塩(アルキルビグアニドの塩(II)に相当)の代わりに表1に記載のビグアニド塩酸塩を用いた以外は実施例19と同様に反応を行った。用いたビ

グアニド塩酸塩と得られたトリアジン化合物の構造および反応収率を表1に示し、得られたトリアジン化合物のNMRおよびIRデータを表2に示した。

(以下余白)

表1(その1)

実施例 N.O.	原料のエステル(Ⅲ)	得られたトリアジン誘導体(Ⅰ)	収率 (%)
1			85
2			72
3			63
4			34
5			37
6			90

表1 (その2)

実施例 N.O.	原料のエステル(Ⅲ)	得られたトリアジン誘導体(Ⅰ)	収率 (%)
7			45
8			90
9			45
10			55
11			40

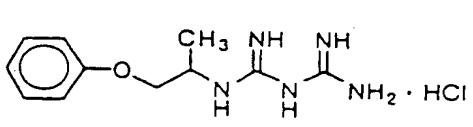
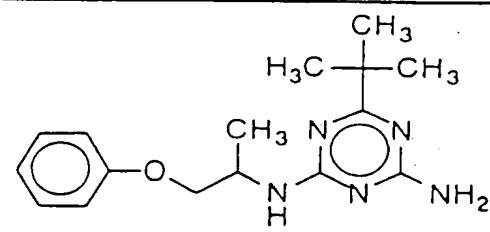
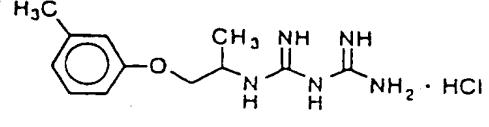
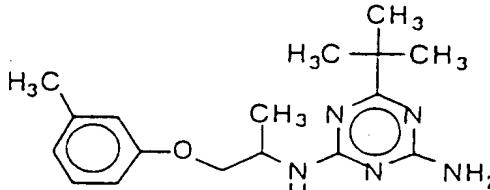
表1(その3)

実施例 N.O.	原料のエステル(Ⅲ)	得られたトリアジン誘導体(Ⅰ)	收率 (%)
12			41
13			34
14			43
15			43
16			33

表1(その4)

実施例 No.	原料のエステル(Ⅲ)	得られたトリアジン誘導体(I)	収率 (%)
17			31
18			35
19			85
20			81
21			75

表1 (その5)

実施例 N.O.	原料のビゲアニド塩酸塩(II)	得られたトリアジン誘導体(I)	收率 (%)
22			80
23			83

(以下余白)

表2(その1)

実施例番号	I R (cm ⁻¹) ^{**} s-トリツン	¹ H-NMR ^{**}
1	1 5 6 0	1.22(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃). 1.32(3H, t, J=7.2Hz, CHCl ₃). 2.27(6H, s, ArCH ₂ × 2). 2.45(2H, q, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃). 3.80-4.05(2H, m, OCH ₂). 4.25-4.60(1H, m, CHNII). 6.40-6.65(3H, m, C ₆ H ₅)
2	1 5 7 5	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃). 1.98(3H, s, Triazine-CH ₃). 2.27(6H, s, ArCH ₂ × 2). 3.75-4.10(2H, m, OCH ₂). 4.25-4.70(1H, m, CHNII). 5.10-5.60(3H, m, NH ₂). 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
3	1 5 5 0	0.99(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃). 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCl ₃). 1.50-2.00(2H, m, CH ₂ CH ₃). 2.29(6H, s, ArCH ₂ × 2). 2.20-2.60(2H, m, CH ₂ CH ₂ CH ₃). 3.70-4.10(2H, m, OCH ₂). 4.15-4.70(1H, m, CHNII). 5.00-5.70(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
4 ^{**}	1 5 7 0	1.22(6H, d, J=7.2Hz, CH ₂ CHClCH ₃). 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHClCH ₃). 2.28(6H, s, ArCH ₂ × 2). 2.40-2.90(1H, m, CH ₂ CHClCH ₃). 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂). 4.25-4.70(1H, m, CHNII). 5.05-5.55(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
5	1 5 9 0	0.91(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃). 1.21(3H, d, J=7.2Hz, CH ₂ CHCH ₃). 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHClCH ₃). 1.30-1.95(2H, m, CH ₂ CH ₃). 2.29(6H, s, ArCH ₂ × 2). 2.20-2.70(1H, m, CH ₂ CHClCH ₃). 3.70-4.20(2H, m, OCH ₂). 4.25-4.65(1H, m, CHNII). 5.00-5.50(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
6 ^{**}	1 5 7 0	1.28(9H, s, CC ₆ H ₅ × 3). 1.34(3H, d, J=7.2Hz, CHClCH ₃). 2.28(6H, s, ArCH ₂ × 2). 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂). 4.25-4.65(1H, m, CHNII). 5.10-5.50(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
7	1 5 6 0	0.97(6H, d, J=6.3Hz, CH ₂ CHClCH ₃). 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃). 2.00-2.40(3H, m, CH ₂ CH). 2.30(6H, s, ArCH ₂ × 2). 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂). 4.20-4.65(1H, m, CHNII). 5.05-5.50(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
8	1 5 5 5	0.90(3H, t, J=7.2Hz, CH ₂ CH ₃). 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHClCH ₃). 1.10-1.50(4H, m, CH ₂ CH ₂ CH ₃). 1.50-1.95(2H, m, Triazine-CH ₂ CH ₃). 2.26(6H, s, ArCH ₂ × 2). 2.25-2.65(2H, m, Triazine-CH ₂). 3.70-4.15(2H, m, OCH ₂). 4.20-4.70(1H, m, CHNII). 5.10-5.60(3H, m, NH ₂ , NH ₃). 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)

^{**} 奥化カリウム錠剤法^{**} 溶媒：重クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン（TMS）^{**} 融点：86.4°C-88.6°C^{**} 融点：107.5°C-110.3°C

表2(その2)

実施例番号	I R (cm ⁻¹) ^{**} S-トリアゾン	¹ H-NMR ^{**}
9	1555	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.15-2.10(10H, m, CH ₂ × 5), 2.27(6H, s, ArCH ₂ × 2), 2.35-2.60(1H, m, Triazine-CH), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.00-5.50(3H, m, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
10	1575	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.42(3H, d, J=8.1Hz, CH ₂ CHO), 2.26(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.36(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 3.95-4.20(1H, m, OCH), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.35-6.15(3H, m, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
11	1570	0.98(3H, t, J=6.3Hz, CH ₂ CH ₃), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.55-2.10(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.36(3H, s, OCH ₃), 3.65-4.00(1H, m, OCH), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.20-5.70(3H, m, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
12	1565	1.20(3H, t, J=7.2Hz, CH ₂ CHCH ₃), 1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₂ × 2), 2.70-3.10(1H, m, Triazine-CH), 3.20-3.80(2H, m, CH ₂ OCH ₃), 3.34(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.65(1H, m, CHNH), 5.10-5.60(3H, m, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
13	1555	1.37(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.51(6H, s, CCCH ₂ × 2), 2.28(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.23(3H, s, OCH ₃), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.65(1H, m, CHNH), 5.35-5.90(3H, m, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
14	1570	1.30(9H, s, CCCH ₂ × 3), 1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.28(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.75-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25(2H, s, Triazine-CH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 5.05-5.80(3H, m, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
15	1570	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.29(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.44(6H, s, OCH ₃ × 2), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.70(1H, m, CHNH), 5.00(1H, s, OCH), 5.60-6.30(3H, m, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)
16	1570	1.25(6H, s, CCCH ₂ × 2), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 2.30(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.62(2H, s, CH ₂ OII), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, CHNH), 4.78(1H, s, OII), 5.05-5.60(3H, m, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₃)

^{*} 塩化カリウム錠剤法^{**} 溶媒：重クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン（TMS）

表2 (その3)

実施例番号	I R (cm ⁻¹) [†] s-トリアゼン	¹H-NMR [‡]
17	1560	1.38(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 1.47(6H, s, CC ₆ H ₅ × 2), 2.30(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.80-4.15(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, C ₆ NH), 4.69(1H, s, OH), 4.90-5.55(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
18	1560	0.98(3H, t, J=8.1Hz, CH ₂ CH ₃), 1.37(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₃), 1.55-2.15(2H, m, CH ₂ CH ₃), 2.27(6H, s, ArCH ₂ × 2), 3.80-4.15(3H, m, OCH ₂ , OCH), 4.15-4.70(2H, m, OH, CHNH), 4.90-5.60(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-6.70(3H, m, C ₆ H ₅)
19	1565	1.25(9H, s, CC ₆ H ₅ × 3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.65(1H, m, C ₆ NH), 4.90-5.40(3H, m, NH, NH ₂), 6.40-7.40(4H, m, C ₆ H ₄)
20	1570	1.35(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 2.28(3H, s, Triazine-CH ₃), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.70(1H, m, C ₆ NH), 5.20-5.70(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-7.40(4H, m, C ₆ H ₄)
21	1560	1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 1.10-2.10(10H, m, CH ₂ × 5), 2.10-2.60(1H, m, Triazine-CH), 3.75-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.20-4.80(1H, m, CHNH), 4.80-5.40(3H, m, NH, NH ₂), 6.45-7.40(4H, m, C ₆ H ₄)
22	1570	1.26(9H, s, CC ₆ H ₅ × 3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 3.80-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.30-4.80(1H, m, C ₆ NH), 5.10-5.75(3H, m, NH, NH ₂), 6.80-7.45(5H, m, C ₆ H ₅)
23	1570	1.27(9H, s, CC ₆ H ₅ × 3), 1.36(3H, d, J=7.2Hz, CHCH ₂), 2.33(3H, s, ArCH ₂), 3.80-4.20(2H, m, OCH ₂), 4.25-4.80(1H, m, C ₆ NH), 5.05-5.65(3H, m, NH, NH ₂), 6.60-7.25(4H, m, C ₆ H ₄)

[†] 奥化カリウム錠剤法[‡] 溶媒：亜クロロホルム、内部標準：テトラメチルシラン（TMS）

(除草剤実施例)

(1) 除草剤の調製

担体としてタルク（商品名：ジークライト）9.7重量部、界面活性剤としてアルキルアリールスルホン酸（商品名：ネオペレックス、花王アトラス（株）製）1.5重量部、およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤（商品名：ソルポール800A、東邦化学工業（株）製）1.5重量部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体9.0重量部と上記実施例1～23で得られた本発明化合物（化合物1～23）1.0重量部または下記表3に示す比較例の化合物（比較化合物1～4）1.0重量部を、均一に粉碎混合して、それぞれ除草剤を得た。

表3

比較例 N.O.	トリアジン誘導体	
1		特開昭63-264465号 記載の化合物No. 31
2		特開昭63-264465号 記載の化合物No. 22
3		国際公開WO90/09378 記載の製造例2の化合物
4		国際公開WO90/09378 記載の製造例13の化合物

(2) 全面処理試験 1 - 試験例 1 ~ 27 -

土壤（荒木田土+砂、1:1）を充填した1/5000アールワグネルポットに作物としてコムギおよびオオムギ、雑草としてオオイヌノフグリの種子を播種し、覆土後温室内で育成した。ポット下部より水を供給し、土壤水分を供試土壤の飽和水分量で維持管理した。これら植物の3葉期に上記(1)で得た所定量の除草剤を水に懸濁し、下記表4に示す6段階の濃度を有する除草剤懸濁液を調製し、これを各々500リットル/ヘクタール相当の液量でポット全面に均一にスプレー散布した。その後、温室内で育成し、処理後30日目に作物への薬害および除草効果を判定した。そしてその結果を基に作物-雑草間の選択性を算出した。結果を表4に示す。

なお、作物への薬害、除草効果、作物-雑草選択性は下記の基準に従って表示した。

作物薬害

根部減少量（対無処理区比）（%）

0	0
1	1~10
2	11~20
3	21~30
4	31~40
5	41~

$$\text{根部減少量（%）} = (\text{処理区の根部重量} / \text{無処理区の根部重量}) \times 100$$

除草効果

残草量（対無処理区比） (%)

0	81～100
1	61～80
2	41～60
3	21～40
4	1～20
5	0

$$\text{残草量 (\%)} = (\text{処理区の残草量} / \text{無処理区残草量}) \times 100$$

選択性

作物に対する薬害の許容範囲：根部減少量 20 %以下

$$\text{選択性} = [\text{根部減少量 “2” (20\%) 以下の最大薬量}] / [\text{除草効果 “5” の最小薬量}]$$

(以下余白)

表4 (その1)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害		除草効果 オオイヌフグクリ	選択性	
			コムギ	オオムギ		コムギ	オオムギ
1	実施例No. 1	2000	2	2	5	16	16
		1000	1	2	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	5		
		62	0	0	4		
2	実施例No. 2	2000	2	2	5	8	8
		1000	1	2	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	4		
		62	0	0	4		
3	実施例No. 3	2000	2	2	5	16	16
		1000	1	1	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	5		
		62	0	0	3		
4	実施例No. 4	2000	2	2	5	16	16
		1000	1	2	5		
		500	1	2	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	5		
		62	0	0	4		
5	実施例No. 5	2000	2	2	5	16	16
		1000	2	2	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	5		
		62	0	0	4		
6	実施例No. 6	2000	2	2	5	16	16
		1000	1	1	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	0	5		
		62	0	0	4		
7	実施例No. 7	2000	2	2	5	16	16
		1000	1	2	5		
		500	1	1	5		
		250	0	1	5		
		125	0	1	5		
		62	0	0	4		

表4(その2)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害 コムキ オオムキ	除草効果 オイシ/フタリ	選択性 コムキ オオムキ
8	実施例No. 8	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 4 4	8 8
9	実施例No. 9	2000 1000 500 250 125 62	2 3 2 2 2 2 1 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
10	実施例No. 10	2000 1000 500 250 125 62	2 3 1 2 1 1 1 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
11	実施例No. 11	2000 1000 500 250 125 62	2 3 1 2 1 1 0 1 0 0 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
12	実施例No. 12	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 1 1 1 1 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16
13	実施例No. 13	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16
14	実施例No. 14	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 4 3	8 8

表4(その3)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害 コムキ オオムキ	除草効果 オオバクツリ	選択性 コムキ オオムキ
15	実施例No. 15	2000 1000 500 250 125 62	2 3 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
16	実施例No. 16	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 4 4	8 8
17	実施例No. 17	2000 1000 500 250 125 62	2 3 2 2 1 1 0 1 0 0 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
18	実施例No. 18	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16
19	実施例No. 19	2000 1000 500 250 125 62	2 3 2 2 1 2 1 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 8
20	実施例No. 20	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 4 4	8 8
21	実施例No. 21	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16

表4(その4)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害 コムギ オオムギ	除草効果 オオイズワカリ	選択性 コムギ オオムギ
22	実施例No. 22	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 1 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16
23	実施例No. 23	2000 1000 500 250 125 62	2 2 1 2 1 2 1 1 1 1 0 0	5 5 5 5 5 4	16 16
24	比較例No. 1	2000 1000 500 250 125 62	2 3 2 2 1 1 1 1 0 0 0 0	5 5 5 4 3 1	4 2
25	比較例No. 2	2000 1000 500 250 125 62	2 3 1 2 1 1 0 1 0 1 0 0	5 5 5 3 2 1	4 2
26	比較例No. 3	2000 1000 500 250 125 62	3 3 3 3 2 2 1 2 1 1 0 1	5 5 5 5 5 4	4 4
27	比較例No. 4	2000 1000 500 250 125 62	3 3 2 2 1 2 0 1 0 1 0 0	5 5 5 5 4 3	4 4

表4の結果から、難防除雑草であるオオイヌノフグリに対する全面処理における作物-雑草間の選択性は、比較例が2~4であるのに比べ本発明除草剤では8~16と高く、本発明除草剤は、薬害を生じやすい過水分条件下でも、極めて優れた作物-雑草選択性を行することは明らかである。

(3) 全面処理試験2-試験例28~33-

上記(2)の全面処理試験1で用いたオオイヌノフグリの代わりに、雑草としてスミレ、イヌタデ、ヤエムグラを用いた以外は、上記全面処理試験1と同様に処理し、除草剤処理後30日目に作物への薬害および除草効果を判定した。薬害および除草効果を判定した。そして、その結果をもとに作物-雑草間の選択性を算出した。結果を表5に示す。

なお、作物への薬害、除草効果、作物-雑草選択性は上記(2)で示した基準に従って表示または算出した。

(以下余白)

表5(その1)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害 アミド アミン	除草効果 アミド アミン	選択性		
					アミド アミン	アミド アミン	アミド アミン
2 8	実施例N o. 4	2000 1000 500 250 125 62	2 1 2 0 1 0	5 5 5 5 5 5	5 5 5 5 5 5	32 32 32 32 32 4	16 16 16 16 16 16
2 9	実施例N o. 6	2000 1000 500 250 125 62	2 1 1 0 0 0	5 5 5 5 5 5	5 5 5 5 5 5	32 32 32 32 32 4	16 16 16 16 16 16
3 0	実施例N o. 13	2000 1000 500 250 125 62	2 1 1 0 1 0	5 5 5 5 5 5	5 5 5 5 5 5	32 32 32 32 32 4	16 16 16 16 16 16

表5(その2)

試験例	化合物例	薬量 g/ha	薬害			除草効果 アミノ・アセチル アミド	選択性 アミノ・アセチル アミド
			1	2	3		
3 1 実施例 N o . 1	2000	2	3	5	5	5	16
	1000	2	2	5	5	5	32
	500	1	2	5	5	5	32
	250	1	1	5	5	5	16
	125	0	1	5	5	5	8
	62	0	0	5	5	4	
3 2 比較例 N o . 1	2000	2	3	5	5	5	4
	1000	2	2	5	5	5	4
	500	1	1	5	5	5	4
	250	1	1	4	4	3	2
	125	0	0	4	3	2	2
	62	0	0	3	2	1	
3 3 比較例 N o . 3	2000	3	3	5	5	5	4
	1000	3	3	5	5	5	8
	500	2	2	5	5	5	8
	250	1	2	5	5	5	8
	125	1	1	5	5	5	8
	62	0	1	5	5	4	

表5の結果から、難防除雑草であるスミレ、イヌタデ、ヤエムグラに対する全面処理における作物-雑草間の選択性は、比較例が2~8であるのに比べ本発明除草剤では16~32と高く、本発明除草剤は、薬害を生じやすい過水分条件下でも、極めて優れた作物-雑草選択性を有することは明らかである。

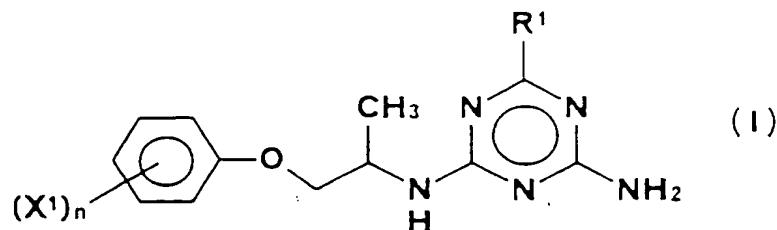
産業上の利用可能性

本発明によれば、根部阻害等の薬害を生じやすい過水分条件下においても極めて優れた作物-雑草選択性を示す新規なトリアジン誘導体、その製造方法、それを有効成分とする新規な除草剤およびそれを用いた除草方法が提供される。

(以下余白)

請求の範囲

1. 一般式 (I)



(式中、 X' は直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基またはハロゲン原子であり、 n は0または1～4の整数であり、 n が2以上の整数である場合、複数の X' は互いに同一または異なっていてもよい； R' は1～4個の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基であり、前記直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基が2個以上の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基で置換されている場合、複数の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なっていてもよい。)で表されるトリアジン誘導体またはその塩。

2. X' がメチル基またはフッ素原子である、請求の範囲第1項に記載の化合物。

3. n が0、1または2である、請求の範囲第2項に記載の化合物。

4. n が1または2であり、 X' の置換位置がフェノキシ基の3位および／または5位である、請求の範囲第3項に記載の化合物。

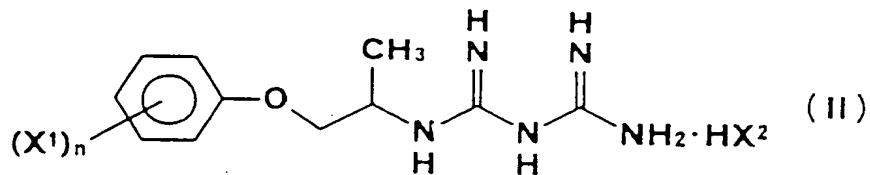
5. R' が1～4個の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ基および／またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐 $C_1 \sim C_4$ アルキル基である、請求の範囲第1項に記載の化合物。

6. R'が未置換の直鎖または分岐C₁～C₆アルキル基である、請求の範囲第5項に記載の化合物。

7. R'が1または2個のC₁～C₄アルコキシ基で置換されている直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基、または1個のヒドロキシ基で置換されている直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基である、請求の範囲第5項に記載の化合物。

8. R'が1または2個のメトキシ基、1個のブトキシ基または1個のヒドロキシ基によって置換された、直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基である、請求の範囲第7項に記載の化合物。

9. 一般式 (II)

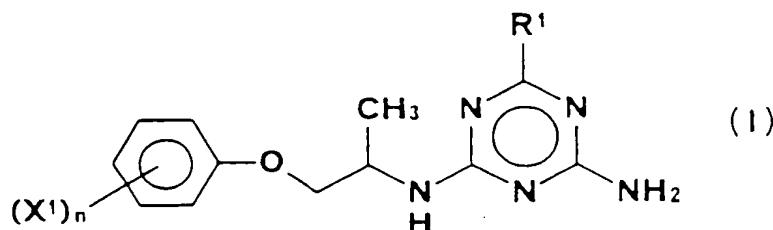


(式中、R'は直鎖または分岐C₁～C₄アルキル基またはハロゲン原子であり、nは0又は1～4の整数であり、nが2以上の整数である場合、複数のR'は互いに同一または異なっていてもよい；HX²はハロゲン原子である。) で表されるアルキルビグアニドの塩と、一般式 (III)



(式中、R'は1～4個のC₁～C₄アルコキシ基および/またはヒドロキシ基によって置換されていてもよい直鎖または分岐C₁～C₁₀アルキル基であり、前記直鎖または分岐C₁～C₁₀アルキル基が2個以上のC₁～C₄アルコキシ基および/また

はヒドロキシ基で置換されている場合、複数のC₁～C₄アルコキシ基および／またはヒドロキシ基は互いに同一または異なっていてもよい；R²はC₁～C₄アルキル基である。) で表されるエステル類とを反応させることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の一般式 (I)



(式中、X'、nおよびR'は上記定義のとおりである。) で表されるトリアジン誘導体の製造方法。

10. 脱水剤を添加して反応を行うことを特徴とする、請求の範囲第9項に記載のトリアジン誘導体の製造方法。

11. 請求の範囲第1～8項に記載のトリアジン誘導体またはその塩を有効成分として含有する除草剤。

12. 除草有効量の請求の範囲第1～8項に記載のトリアジン誘導体またはその塩を、そのままの形態でまたは助剤と共に施用することを特徴とする除草方法。

13. イネ科植物の栽培において雑草を防除するための請求の範囲第1～2項に記載の除草方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP96/00360

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁶ C07D251/18, A01N43/68

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl⁶ C07D251/18, A01N43/68

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 5-320145, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), December 3, 1993 (03. 12. 93) & EP, 509544, A & US, 5250686, A	1 - 13
A	JP, 7-267805, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), October 17, 1995 (17. 10. 95) (Family: none)	1 - 13
A	JP, 7-82107, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 28, 1995 (28. 03. 95) (Family: none)	1 - 13
A	JP, 7-76504, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), March 20, 1995 (20. 03. 95) (Family: none)	1 - 13
A	JP, 6-298745, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), October 25, 1994 (25. 10. 94) (Family: none)	1 - 13
A	JP, 7-39400, B2 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), May 1, 1995 (01. 05. 95) & WO, 90-9378, A	1 - 13

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
March 15, 1996 (15. 03. 96)Date of mailing of the international search report
April 9, 1996 (09. 04. 96)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office
Facsimile No.Authorized officer
Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. CL^{*} C07D 251/18, A01N 43/68

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. CL^{*} C07D 251/18, A01N 43/68

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ON LINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 5-320145, A(出光興産株式会社), 3. 12月. 1993 (03. 12. 93) &EP, 509544, A&US, 5250686, A	1-13
A	JP, 7-267805, A(出光興産株式会社), 17. 10月. 1995 (17. 10. 95) (ファミリーなし)	1-13
A	JP, 7-82107, A(出光興産株式会社), 28. 3月. 1995 (28. 03. 95) (ファミリーなし)	1-13

 C欄の続きを参照する。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日
 若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献
 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の
 後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と
 矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のため
 に引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規
 性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の上記の文
 献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性
 がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 15. 03. 96	国際調査報告の発送日 09.04.96
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 塙中直子 ^印 電話番号 03-3581-1101 内線 3450 4 C 7 4 3 1

C(続き) 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP. 7-76504, A(出光興産株式会社), 20. 3月. 1995(20. 03. 95)(ファミリーなし)	1-13
A	JP. 6-298745, A(出光興産株式会社), 25. 10月. 1994(25. 10. 94)(ファミリーなし)	1-13
A	JP. 7-39400, B2(出光興産株式会社), 1. 5月. 1995(01. 05. 95) &WO, 90-9378, A	1-13

